

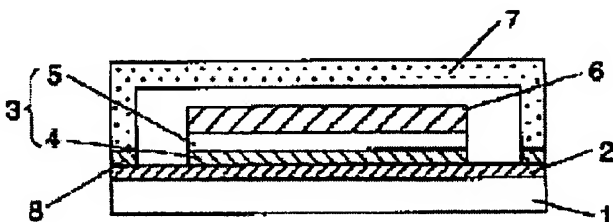
ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE USING IT

Patent number: JP2001085155
Publication date: 2001-03-30
Inventor: KOMATSU TAKAHIRO; GYOTOKU AKIRA; KOMORI SHINJI; MIYAKE SUMIYA
Applicant: MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD; SUMITOMO BAKELITE CO
Classification:
- international: H01L51/52; H01L51/50; (IPC1-7): H05B33/04
- european:
Application number: JP19990258537 19990913
Priority number(s): JP19990258537 19990913

[Report a data error here](#)

Abstract of JP2001085155

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent element and device inhibiting the growth of dark spots and aged deterioration due to decrease in brightness and having an extended life by preventing oxygen and moisture from entering from the outside. **SOLUTION:** This element has a laminate having at least one organic thin-film layer 3 sandwiched between a pair of electrodes 2, 6 arranged on a substrate 1, and at least a portion of the laminate is isolated from the outside by a hermetic shield material 7. The laminate is bonded to at least a portion of the hermetic shield material 7 by a photocuring resin composition containing at least one organic filler as an essential component selected from the group consisting of an epoxy compound having two or more epoxy groups in a molecule, a photo-cationic curing initiator, a plate-shaped inorganic filler and a scaly inorganic filler, with the organic filler contained in an amount of 20 wt.% or more in the resin composition.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-85155 ✓

(P2001-85155A)

(43) 公開日 平成13年3月30日 (2001.3.30)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-リ-ト [*] (参考)
H 0 5 B 33/04		H 0 5 B 33/04	3 K 0 0 7
33/14		33/14	A

審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平11-258537

(22) 出願日 平成11年9月13日 (1999.9.13)

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(71) 出願人 000002141

住友ベークライト株式会社

東京都品川区東品川2丁目5番8号

(72) 発明者 小松 隆宏

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74) 代理人 100097445

弁理士 岩橋 文雄 (外2名)

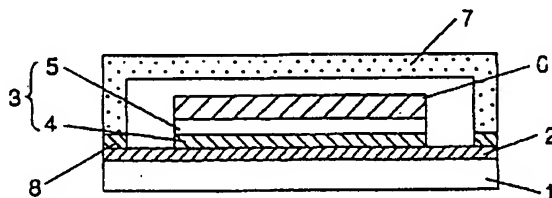
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子及びこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス装置

(57) 【要約】

【課題】 外部からの酸素及び水分の進入を防止してダークスポットの成長や輝度の低下の経時変化を抑え長寿命化を図った有機エレクトロルミネッセンス素子及び装置の提供を目的とする。

【解決手段】 基板1上に配置された一対の電極2、6の間に少なくとも一層の有機薄膜層3が挟持された積層体を備え、この積層体の少なくとも一部分を気密性シールド材7によって外部と遮断し、積層体と気密性シールド材7の少なくとも一部分とを、1分子内に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物、光カチオン硬化開始剤、および板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれる無機充填剤を必須成分とし、かつ無機充填剤が樹脂組成物中に20重量パーセント以上含まれた光硬化性樹脂組成物によって接着する。



〔特許請求の範囲〕

〔請求項1〕基板上に配置された一対の電極と、前記一対の電極の間に少なくとも一層の有機薄膜層が挟持された積層体を有し、前記積層体の少なくとも一部分が気密性シールド材によって外部と遮断された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記積層体と前記気密性シールド材の少なくとも一部分とが、1分子内に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物、光カチオン硬化開始剤、および板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれる無機充填剤を必須成分とし、かつ前記無機充填剤が樹脂組成物中に20重量パーセント以上含まれた光硬化性樹脂組成物によって接着されていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項2〕基板上に配置された一対の電極と、前記一対の電極の間に少なくとも一層の有機薄膜層が挟持された積層体を有し、前記積層体の少なくとも一部分が気密性シールド材によって外部と遮断された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記積層体と前記気密性シールド材の少なくとも一部分とが、1分子内に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物、光カチオン硬化開始剤、板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれる無機充填剤、およびシランカップリング剤を必須成分とし、かつ前記無機充填剤が樹脂組成物中に20重量パーセント以上含まれた光硬化性樹脂組成物によって接着されていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項3〕前記エポキシ化合物が芳香環を有することを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項4〕前記芳香環を有するエポキシ化合物が、ビスフェノール型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂からなる群より少なくとも1つ選ばれるエポキシ化合物であることを特徴とする請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項5〕前記芳香環を有するエポキシ化合物が、ビスフェノール型エポキシ樹脂とナフタレン型エポキシ樹脂を必須とすることを特徴とする請求項3または4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項6〕前記ビスフェノール型エポキシ樹脂が、2, 2'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタンのジグリシジルエーテル化物であり、ナフタレン型エポキシ樹脂が1, 6-ジヒドロキシナフタレンのジグリシジルエーテル化物であることを特徴とする請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項7〕前記光カチオン硬化開始剤が、ヘキサフルオロアンチモネート、およびテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレートからなる群より選ばれた少なくとも1種のカウンターアニオンを含むことを特徴とする請求項1から6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネ

ッセンス素子。

〔請求項8〕前記無機充填剤が、タルク、マイカ、および雲母からなる群より選ばれた少なくとも1種であることを特徴とする請求項1から7のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項9〕前記無機充填剤の平均粒径が、10 μm以下であることを特徴とする請求項1から8のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項10〕前記光硬化性樹脂組成物のエポキシ化合物が2, 2'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタンのジグリシジルエーテル化物と1, 6-ジヒドロキシナフタレンのジグリシジルエーテル化物からなり、これにヘキサフルオロアンチモネートをカウンターアニオンとする光カチオン硬化開始剤成分、無機充填剤として平均粒径10 μm以下のタルクを配合したことを特徴とする請求項1から9のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項11〕前記光硬化性樹脂組成物のエポキシ化合物が2, 2'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタンのジグリシジルエーテル化物と1, 6-ジヒドロキシナフタレンのジグリシジルエーテル化物からなり、これにテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレートをカウンターアニオンとする光カチオン硬化開始剤成分、無機充填剤として平均粒径10 μm以下のタルクを配合したことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

〔請求項12〕請求項1から11のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を用いたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス装置。

30 【発明の詳細な説明】

【0001】

〔発明の属する技術分野〕本発明は、種々の表示装置や光源またはバックライトもしくは光通信機器用の発光素子として用いられる有機エレクトロルミネッセンス素子及びこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス装置に係り、特に有機エレクトロルミネッセンス素子の信頼性向上のための封止構造の最適化に関する。

【0002】

〔従来の技術〕エレクトロルミネッセンス素子(以下、「EL素子」と記す)とは、固体蛍光性物質の電界発光を利用した発光デバイスであり、現在までに無機系材料を発光体として用いた無機EL素子が実用化され、液晶ディスプレイのバックライトやフラットディスプレイ等への応用展開が一部で図られている。

【0003】一方、有機材料を用いた有機EL素子に関する研究も古くから注目され、様々な検討が行われてきたが、発光効率が非常に悪いことから本格的な実用化研究へは進展しなかった。しかし、1987年にコダック社のシー、ダブリュー、タン(C. W. Tang)らにより、有機材料を正孔輸送層と発光層の2層に分けた機

能分離型の積層構造を有する有機EL素子が提案され、10V以下の低電圧にもかかわらず1000cd/m²以上の高輝度発光が得られることが明らかとなった

(C. W. Tang and S. A. Vanslyke: Appl. Phys. Lett. 51 (1987) P913)。これ以降、有機EL素子が俄然注目され始め、現在も同様の構成を有する積層型の有機EL素子についての研究が盛んに行われている。

【0004】ここで、従来の有機EL素子構成について図3により簡単に説明する。

【0005】図3は従来の有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図である。

【0006】図3において、1は基板、2は正孔注入電極、3は有機薄膜層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は陰極である。すなわち、従来の有機EL素子は、ガラス等の透明又は半透明な基板1と、基板1上にスパッタリング法等により形成されたITOなどの透明な導電性膜からなる正孔注入電極2と、正孔注入電極2上に抵抗加熱蒸着法等により形成されたTPD(N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ジフェニル-4,4'-ジアミン)等からなる正孔輸送層4と、正孔輸送層4上に抵抗加熱蒸着法等により形成されたAlq₃(8-Hydroxyquinoline Aluminum)等からなる発光層5と、発光層5上に抵抗加熱蒸着法等により形成された金属膜等からなる陰極6とを備えている。

【0007】上記構成を有する有機EL素子の正孔注入電極2をプラス極として、また陰極6をマイナス極として直流電圧または直流電流を印加すると、正孔注入電極2から正孔輸送層4を介して発光層5に正孔が注入され、陰極6から発光層5に電子が注入される。発光層5では正孔と電子の再結合が生じ、これに伴って生成される励起子が励起状態から基底状態へ移行する際に発光現象が起こる。また、有機薄膜層3を構成する層構造や発光層5に用いる材料を変えることによって、発光波長を変えることができる。

【0008】このような有機エレクトロルミネッセンス素子の発光特性を向上させるために、これまで、発光層や正孔輸送層等の有機薄膜層の構成やこれに用いる有機材料の改良や、陽極及び陰極に用いる材料の改良が検討されてきた。

【0009】例えば、後者の陽極及び陰極の材料の改良については、発光層へ電子の注入が容易となるように陰極と発光層との障壁を低くすることを目的として、米国特許第4,885,211号明細書に記載のMg-Ag合金や特開平5-121172号公報に記載のAl-Li合金等のような仕事関数が小さく、かつ電気伝導性の高い材料が提案され、現在でもこのような材料が広く用いられている。

【0010】しかしながら、これらの合金材料は活性が

高く、化学的に不安定であるために、空気中の水分や酸素との反応によって腐食や酸化を生じる。このような陰極の腐食や酸化は、発光層内に存在するダークスポット(D. S.)と呼ばれる未発光部を著しく成長させ、有機エレクトロルミネッセンス素子における経時的な特性劣化の原因となっている。

【0011】また、陰極に限らず、発光層や正孔輸送層等の有機薄膜層に用いられる有機材料についても、一般に水分や酸素との反応によって構造の変化を生じるた

め、同様にダークスポットの成長を招く原因となる。

【0012】本発明者らは、ダークスポットの成長に関して様々な観点から検討した結果、例えば10⁻⁴Torr程度の真空中に存在するような極微量の水分であっても、ダークスポットの成長を促進させてしまうことを発見した。したがって、ダークスポットの成長を完全に無くし、有機エレクトロルミネッセンス素子の耐久性や信頼性を高めるためには、陰極や有機薄膜層に用いる材料と水分や酸素との反応を防止するために、有機エレクトロルミネッセンス素子全体が封止されている必要があ

る。

【0013】有機エレクトロルミネッセンス素子の封止については、これまで多くの検討が行われてきたが、中でも最も一般的な方法は、ガラス製キャップ等からなる気密性シールド材を有機エレクトロルミネッセンス素子に封着するというものである。このような封止方法には、無機エレクトロルミネッセンス素子で既に用いられているように、背面電極の外側にガラス板を設け、背面電極とガラス板の間にシリコンオイルを封入する方法や、特開平5-089959号公報に開示されているように、絶縁性無機化合物からなる保護膜を形成した後、電気絶縁ガラス又は電気絶縁性気密流体によりシールドする方法等がある。

【0014】

【発明が解決しようとする課題】上述したように、有機エレクトロルミネッセンス素子の封止方法については様々な提案が成されているが、未だ有効な封止方法は開発されていない。何故ならば、これまでの封止材料や封止手法では水分や酸素の進入を完全に防ぐことはできないからである。例えば、前述した特開平5-89959号公報に記載の方法におけるカバーガラスと基板との接着に用いられたエポキシ樹脂は、一般に3~5(g/m²・24h/mm)、ポリイミド樹脂でも2(g/m²・24h/mm)程度の水蒸気透過性がある。このため、接着部分からの水分の進入を完全に抑えることはできず、その結果ダークスポットの成長を招いてしまう。

【0015】このほかにも、熱硬化型のエポキシ樹脂を用い封止する方法では、有機EL素子の場合、高温に曝すと変質する場合があります。50~100℃が限界であるため、硬化が不十分となり、高い接着力が得られず樹脂と基板の界面からの水分の進入が大きくなる。また、光

硬化型樹脂で最も一般的なラジカル硬化系のアクリレート樹脂は耐湿性が悪いという問題があり、いずれもダークスポットの成長を招く。

【0016】さらに、特開平5-182759号公報には、光硬化性樹脂と透過性の小さな基板とを具備した封止方法に関する提案があるが、この方法では60℃・90%RHのような高温多湿の環境下では水分の進入を完全に抑えることは不可能である。これは、高温多湿下では光硬化性樹脂中を水分が透過してくる以外に、光硬化性樹脂の接着力不足による樹脂と基板の界面からの水分の進入が大きいためである。

【0017】本発明は、外部からの酸素及び水分の進入を防止してダークスポットの成長や輝度の低下の経時変化を抑え長寿命化を図った有機エレクトロルミネッセンス素子及び装置を提供することを目的とする。

【0018】

【課題を解決するための手段】本発明は、基板上に配置された一対の電極と、前記一対の電極の間に少なくとも一層の有機薄膜層が挟持された積層体とを有し、前記積層体の少なくとも一部分が気密性シールド材によって外部と遮断された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記積層体と前記気密性シールド材の少なくとも一部分とが、1分子内に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物、光カチオン硬化開始剤、および板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれた無機充填剤を必須成分とし、かつ前記無機充填剤が樹脂組成物中に20重量パーセント以上含まれた光硬化性樹脂組成物によって接着されていることを特徴とする。

【0019】本発明によれば、ダークスポットの成長や輝度の低下という経時変化の少ない信頼性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子が得られる。

【0020】

【発明の実施の形態】本発明は、基板上に配置された一対の電極と、前記一対の電極の間に少なくとも一層の有機薄膜層が挟持された積層体とを有し、前記積層体の少なくとも一部分が気密性シールド材によって外部と遮断された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記積層体と前記気密性シールド材の少なくとも一部分とが、1分子内に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物、光カチオン硬化開始剤、および板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれた無機充填剤を必須成分とし、かつ前記無機充填剤が樹脂組成物中に20重量パーセント以上含まれた光硬化性樹脂組成物によって接着されていることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子であり、外部からの水分や酸素をある程度遮断することが可能となるため、発光層におけるダークスポットの成長を防止し、発光輝度の経時的な低下を抑制することができるという作用を有する。

【0021】ここで、有機エレクトロルミネッセンス素子の重要な信頼性試験の1つとして耐湿性試験がある。この耐湿性試験は、高温高湿条件下で有機エレクトロルミネッセンス素子を長時間処理し、発光層のダークスポットの成長を観察するものである。本発明者らはこの接着樹脂である光硬化性樹脂組成物により形成される接着層の透湿性が組成物に添加する無機充填剤の形状、特性や添加量に大きく影響されることを見いだした。すなわち板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より選ばれた少なくとも1種の無機充填剤を必須成分とし、かつ光硬化性エポキシ樹脂の樹脂組成物中に20重量パーセント以上含まれていると透湿性は小さくなり、有機エレクトロルミネッセンス素子の耐湿性試験において、有機エレクトロルミネッセンス素子内への水分の進入に起因すると考えられるダークスポットの成長を抑制することができることが判明した。

【0022】板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤とはそのほとんどの場合において劈開性を有する無機充填剤であり、劈開とは、標準化学用語辞典（平成3年、社団法人日本化学会編集）569頁に記載されているように、結晶がある決まった方向に容易に割れるかあるいはがれて平滑な面（劈開面）が現れることをいう。つまり結果的に劈開性を有していれば個々の粒子は板状か鱗片状となる。このような無機充填剤の例としてはタルク、マイカ、雲母などがあるが、形状の要件さえ満たせばガラスフレークでもよく、特に限定されるものではない。

【0023】また、これらの無機充填剤の添加量も重要なファクターである。本発明の光硬化性樹脂組成物において、板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれた無機充填剤の含有量が20重量パーセント以上で透湿性を顕著に低下させることができる。

【0024】さらに無機充填剤の粒径は、平均粒径が10μm以下であれば、低透湿性実現にはより有利となる。板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれた無機充填剤の含有量が20重量パーセント以上含まれれば必要に応じて他に無定形や球状の無機充填剤を添加することは何ら差し支えない。

【0025】本発明における1分子内に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物は芳香環を有するものであることが好ましい。また、ビスフェノール型エポキシ樹脂およびナフタレン型エポキシ樹脂からなる群より少なくとも1つ選ばれたエポキシ化合物が好ましく、さらに、ビスフェノール型エポキシ樹脂とナフタレン型エポキシ樹脂が同時に含まれていることがより好ましい。ビスフェノール型エポキシ樹脂は、分子内に芳香環があることで分子自体が撥水性となり透湿性は小さくなると同時に低粘度であることが特長である。特に2,2'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタンのジグリシジルエーテル化合物は低粘度でかつ開始剤等他成分の溶解性も良

好であり好ましい。またナフタレン型エポキシ樹脂は高粘度となる欠点があるものの、きわめて良好な低透湿性を実現でき、特に、1, 6-ジヒドロキシナフタレンのグリシジルエーテル化物が好ましい。ビスフェノール型エポキシ樹脂との組み合わせは非常に有効であり、外部からの水分や酸素を遮断し発光層におけるダークスポットの成長を防止し、発光輝度の経時的な低下を抑制することができるという作用を有する。

【0026】本発明における光硬化性樹脂組成物の必須成分である光カチオン硬化開始剤は、ジアゾニウム塩、ヨードニウム塩、スルホニウム塩などいくつかの種類があるが、透湿性にはカチオン側構造よりもむしろカウンターアニオンの構造が重要である。カウンターアニオンがヘキサフルオロアンチモネート、テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートであることが好ましい。光カチオン硬化開始剤（b）としてヘキサフルオロアンチモネートやテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートを用いた場合、紫外線照射により発生する酸（プロトン）の活性が高くなり、光硬化性樹脂組成物の架橋密度を上げ透湿性を小さくする。

【0027】また、本発明においては、各接着部材との吸湿時密着性も重要である。エポキシ化合物、光カチオン硬化開始剤、および無機充填剤に加えて、さらに必須成分としてシランカップリング剤を添加すれば、界面の密着性がより一層強くなり、界面から侵入する水を抑止することができる。このシランカップリング剤としてはエポキシ基を有するものが反応性の面でより好ましい。

【0028】本発明における光硬化性樹脂組成物には、この他、可とう性を得るためのエラストマー、消泡剤、チクソ付与剤、希釈剤、補助的な熱硬化型硬化促進剤を必要に応じて添加することは何らさしつかえない。

【0029】以下に本発明の実施の形態について、図を用いて説明する。

【0030】図1は本発明の実施の形態を示す有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図である。

【0031】図1において基板1の上に正孔注入電極2が形成され、この正孔注入電極2の上に正孔輸送層4と発光層5の二層からなる有機薄膜層3が形成され、さらにその上に電子注入電極6が積層されている。そして、これらの積層体の周りには気密性シールド材7が配置されその下端を接着層8により正孔注入電極2に接続している。

【0032】基板1としては、透明又は半透明なガラス、PET（ポリエチレンテレフタレート）、ポリカーボネート、非晶質ポリオレフィン等が用いられる。また、基板1はこれらの材料を薄膜とした可撓性を有するものやフレキシブル基板でもよい。正孔注入電極2としては、ITO、ATO（Sbをドーブした SnO_2 ）、AZO（Alをドーブした ZnO ）等が用いられる。

【0033】有機薄膜層3は、発光層5のみの単層構造

の他に、正孔輸送層4と発光層5又は発光層5と電子輸送層（図示せず）の2層構造や、正孔輸送層4と発光層5と電子輸送層の3層構造のいずれの構造でもよい。但し、このような2層構造又は3層構造の場合には、正孔輸送層4と正孔注入電極2が、又は電子輸送層と電子注入電極6が接するように積層して形成される。

【0034】発光層5としては、可視領域で蛍光特性を有し、かつ成膜性の良い蛍光体からなるものが好ましく、Alq₃やBe-ベンゾキノリノール（BeBq₂）

の他に、2, 5-ビス（5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル）-1, 3, 4-チアジアゾール、4, 4'-ビス（5, 7-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル）スチルベン、4, 4'-ビス〔5, 7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕スチルベン、2, 5-ビス（5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル）チオフィン、2, 5-ビス〔〔5- α , α -ジメチルベンジル〕-2-ベンゾオキサゾリル〕チオフェン、2, 5-ビス〔5, 7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕-3, 4-ジフェニルチオフェン、2, 5-ビス（5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル）チオフェン、4, 4'-ビス（2-ベンゾオキサゾリル）ビフェニル、5-メチル-2-〔2-〔4-（5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル）フェニル〕ビニル〕ベンゾオキサゾリル、2-〔2-（4-クロロフェニル）ビニル〕ナフト〔1, 2-d〕オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2, 2'-（*p*-フェニレンジビニレン）-ビスベンゾチアゾール等のベンゾチアゾール系、2-〔2-〔4-（2-ベンゾイミダゾリル）フェニル〕ビニル〕ベンゾイミダゾール、2-〔2-（4-カルボキシフェニル）ビニル〕ベンゾイミダゾール等のベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤や、トリス（8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）マグネシウム、ビス（ベンゾ〔f〕-8-キノリノール）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウムオキシド、トリス（8-キノリノール）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノール）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノール）カルシウム、ポリ〔亜鉛、ビス（8-ヒドロキシ-5-キノリノール）メタン〕等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエビンドリジオン等の金属キレート化オキシノイド化合物や、1, 4-ビス（2-メチルスチリル）ベンゼン、1, 4-（3-メチルスチリル）ベンゼン、1, 4-ビス（4-メチルスチリル）ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1, 4-ビス（2-エチルスチリル）ベンゼン、1, 4-ビス（3-エチルスチリル）ベンゼン、1, 4-ビス（2-メチルスチリル）2-メチルベンゼン等のスチリルベンゼン系化合物や、2, 5-ビス（4-メチルスチリル）ピラ

ジン、2, 5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ナフチル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス(4-メトキシスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(4-ピフェニル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ピレニル)ビニル]ピラジン等のジスチルピラジン誘導体や、ナフタルイミド誘導体や、ペリレン誘導体や、オキサジアゾール誘導体や、アルダジン誘導体や、シクロペンタジエン誘導体や、スチリルアミン誘導体や、クマリン系誘導体や、芳香族ジメチリデン誘導体等が用いられる。さらに、アントラセン、サリチル酸塩、ピレン、コロネン等も用いられる。

【0035】正孔輸送層4としては、正孔移動度が高く、透明で成膜性の良いものが好ましくTPD等のトリフェニルアミン誘導体の他に、ボルフィン、テトラフェニルボルフィン銅、フタロシアニン、銅フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキサイド等のポリフィリン化合物や、1, 1'-ビス(4-(ジ-*p*-トリルアミノ)フェニル)シクロヘキサン、4, 4', 4'-トリメチルトリフェニルアミン、N, N, N', N'-テトラキス(*p*-トリル)-*p*-フェニレンジアミン、1-(N, N-ジ-*p*-トリルアミノ)ナフタレン、4, 4'-ビス(ジメチルアミノ)-2-2'-ジメチルトリフェニルメタン、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノビフェニル、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ-*m*-トリル-4, N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-4, 4'-ジアミン、4'-ジアミノビフェニル、N-フェニルカルバゾール等の芳香族第三級アミンや、4-ジ-*p*-トリルアミノスチルベン、4-(ジ-*p*-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-*p*-トリルアミノ)スチリル]スチルベン等のスチルベン化合物や、トリアゾール誘導体や、オキサジザゾール誘導体や、イミダゾール誘導体や、ポリアリールアルカン誘導体や、ピラゾリン誘導体や、ピラズロン誘導体や、フェニレンジアミン誘導体や、アニールアミン誘導体や、アミノ置換カルゴン誘導体や、オキサゾール誘導体や、スチリルアントラセン誘導体や、フルオレノン誘導体や、ヒドラゾン誘導体や、シラザン誘導体や、ポリシラン系アニリン系共重合体や、高分子オリゴマーや、スチリルアミン化合物や、芳香族ジメチリデン系化合物や、ポリ3-メチルチオフェン等の有機材料が用いられる。また、ポリカーボネート等の高分子中に低分子の正孔輸送層4用の有機材料を分散させた、高分子分散系の正孔輸送層4も用いられる。

【0036】なお、電子輸送層としては、1, 3-ビス(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾリル)フェニレン(OXD-7)等のオキサゾール誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェニルキノン誘導体等が用いられる。

【0037】電子注入電極6としては、Al, In, Mg, Ti等の金属や、Mg-Ag合金、Mg-In合金等のMg合金や、Al-Li合金、Al-Sr合金、Al-Ba合金等のAl合金等が用いられる。特にAl-Mg合金あるいはAl-Li-Mg合金は、低仕事関数であってしかも耐食性の優れた金属であり、きわめて有効である。

【0038】本発明の特徴の一つは、ステンレスやガラス等の気密性シールド部材7を用い、これを基板1に光硬化性樹脂組成物の接着層8で接着し、有機薄膜EL素子を封止していることである。接着層8の光硬化性樹脂組成物については、樹脂の耐湿性及び基板1と気密性シールド部材7との接着性の両面から鋭意検討した。本発明における接着層8に用いる光硬化性樹脂組成物は、1分子内に2個以上のエポキシ基を有するエポキシ化合物、光カチオン硬化開始剤、板状無機充填剤、鱗片状無機充填剤からなる群より少なくとも1つ選ばれる無機充填剤を必須成分とし、かつ無機充填剤が樹脂組成物中に20重量パーセント以上含むものである。このような光硬化性樹脂組成物であれば、優れた耐湿性と、接着性を実現できることを本発明者らは確認した。

【0039】本発明により製造される有機EL素子の構成は特に限定されるものではなく、例えば、上記に示した正孔注入電極(陽極)2、正孔輸送層4、発光層5、電子注入電極(陰極)6以外の構造や、正孔注入電極2、発光層5、電子注入電極6の単層型素子または正孔注入電極2、発光層5、電子輸送層、電子注入電極6の2層型構造、及び正孔注入電極2、正孔輸送層4、発光層5、電子輸送層、電子注入電極6の3層構造であってもよい。

【0040】また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、図1に示したものに代えて、図2に示すように基板1上に正孔注入電極2、正孔輸送層4と発光層5等からなる有機薄膜層3、さらには電子注入電極6を形成した後に本発明の光硬化性樹脂組成物を被覆層9として積層し、その後気密性シールド材7と基板1を光硬化性樹脂組成物の接着層8で接着してもよい。

【0041】本発明の有機EL素子の製造方法は以下のとおりである。

【0042】まず、公知の方法によりガラス等の基板1上に、ITO等からなる正孔注入電極2、TPD等からなる正孔輸送層4、Alq₃等からなる発光層5、Al-Li合金等からなる電子注入電極6を、抵抗加熱蒸着法やイオンビームスパッタ法等により順次成膜し、積層する。さらに、接着工程として、基板1に樹脂組成物の接着層8により気密性シールド部材7を接着すれば、図1に示した有機EL素子を得る。

【0043】

【実施例】本発明者が行った有機エレクトロルミネッセンス素子の作成要領は次のとおりである。

〔0044〕まず、全面にITO膜が形成されたガラスの基板1に所定のパターン形状を形成するように、ITOを利用した正孔注入電極2（膜厚160nm）を塩酸を用いてエッチングした。この基板1を洗剤（商品名「セミコクリーン」、フルウチ化学社製）で5分間超音波洗浄した後、純水で10分間超音波洗浄し、さらにアンモニア過酸化水素溶液（ $\text{NH}_3:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}=2:2:5$ ）で5分間超音波洗浄した後、70℃の純水で5分間超音波洗浄を行い、窒素ブローにて水分を飛ばし、最後に250℃の温度で加熱し乾燥させた。

〔0045〕このように洗浄した基板1を抵抗加熱蒸着装置内にセットし、チャンバー内を 2×10^{-8} Torr以下の真空度まで減圧した後、TPDを蒸着源とし約500Åの正孔輸送層4を形成した。続いて、Alq₃を蒸着源として約750Åの発光層5を形成する。蒸着速度は特に限定されないが、TPD及びAlq₃共に2Å/sで行った。次に、同一真空層内にて15at%のLiを含むAl-Li合金を蒸着源とし、2000Åの膜厚の電子注入電極6を形成した。

〔0046〕この素子が形成された基板1を真空チャンバーから取り出し、素子の外側に気密性シールド部材7を形成した。すなわち、気密性シールド材7にSUS303（Fe-Cr-Ni合金）を使用し、基板1と接する部分に光硬化性エポキシ樹脂をディスペンサー用い塗布し、素子が形成されたガラスの基板1に重ね合わせ、*

*有機層にダメージを与えないようにして高圧水銀灯により紫外線を7J/cm²となるよう照射した。このようにして、気密性シールド材7が光硬化性樹脂組成物によって接着された有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

〔0047〕作製した有機エレクトロルミネッセンス素子の評価のため、耐湿性試験を実施し、（表1）及び（表2）の結果を得た。この試験での不良判定は素子表面の最も大きいダークスポットが50ミクロン以上となったところで不良とし、同様の試験を3回繰り返した平均時間を記した。

〔0048〕また、比較例5については熱硬化型樹脂であるので、50℃、3時間の熱硬化条件で硬化し、ガラスの基板1と気密性シールド材7を接着後上記と同様の耐湿性試験を実施した。

〔0049〕基板1と気密性シールド材7の接着に用いる光硬化性樹脂組成物のすべての配合は（表1）および（表2）に従って実施し、ディスペンサーを用い、加熱、熔融、混合した後、5インチ3本ロールを用い混練し、粘ちょうな液状の光硬化性樹脂組成物を得た。また、耐湿性試験の結果は（表1）および（表2）にまとめて記した。

〔0050〕

〔表1〕

（単位：重量パーセント）

配合	樹脂組成物	実施例							
		1	2	3	4	5	6	7	8
配合	エポミックR-710 (注1)	20	55		10			26	50
	エポコート828 (注2)				10	65	30		
	エポクロンHP-4032 (注3)	45		60	10		20	30	
	1,6-ヘキサジオール			15	10				5
	アデカオプトマーSP-170 (注4)	4		5	2		4	4	
	ロードシル2074 (注5)		4		2	5			4
	A-187 (注6)	1	1		1		1		1
	タルクX (注7)	30		20		30	25		10
	タルクY (注8)				20			40	
	マイカ (注9)		40						15
	シリカ (注10)				35		20		15
特性	フィラー含有量	30	40	20	55	30	45	40	40
	合計	100	100	100	100	100	100	100	100
特性	耐湿性試験 (注11)	4500時間	3800時間	3000時間	3800時間	3000時間	4000時間	3500時間	3000時間

注1 三井化学(株)製 ビスフェノールAD型エポキシ樹脂(2,2'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタンのグリシジルエーテル化物)

注2 油化シェルエポキシ(株)製 ビスフェノールA型エポキシ樹脂

注3 大日本インキ工業(株)製 ナフタレン型エポキシ樹脂

注4 旭電化工業(株)製 ヘキサフルオロアンチモンエーテル含有光開始剤

注5 ローンプーラン製 テトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート含有光開始剤

注6 日本ユニカー(株)製 シランカップリング剤

注7 平均粒径1μmのタルク

注8 平均粒径8μmのタルク

注9 平均粒径6μmのマイカ

注10 平均粒径5μmの球状熔融シリカ

注11 高温高湿保管試験条件 40℃、90%

〔0051〕

〔表2〕

(単位:重量パーセント)

		比較例				
		1	2	3	4	5
配合	EB204 (注1)	65				
	SP1509 (注2)		65			
	イルガキュア651 (注3)	5	5			
	エビコート828 (注4)			85	85	50
	イソホロンジアミン					20
	ポリエーテルポリオールA (注5)				10	
	SP-150 (注6)			5	4	
	A-187 (注7)				1	
	タルクX (注8)	30	30	10		30
	フィラー含有量	30	30	10	0	30
特性	合計	100	100	100	100	100
	耐湿性試験 (注9)	60時間	25時間	65時間	5時間	5時間

注1 ダイセル・ユーシービ(株)製 芳香族ウレタンアクリレート樹脂

注2 昭和高分子(株)製 ビニルエステル樹脂

注3 日本チバガイギー(株)製 光開始剤

注4 油化シェルエポキシ(株)製 ビスフェノールA型エポキシ樹脂

注5 分子量800の2官能ポリエーテルポリオール

注6 旭電化工業(株)製 ヘキサフルオロホスフェート含有光開始剤

注7 日本ユニカー(株)製 シランカップリング剤

注8 平均粒径1 μ mのタルク

注9 高温高湿保管試験条件 40℃、90%

【0052】(表1)及び(表2)から、実施例1～8はいずれも優れた耐湿性を有していることがわかる。また、比較例1、2はラジカル硬化系の光硬化性アクリレート樹脂であるため耐湿性がよくない。比較例3は光硬化性エポキシ樹脂であるが、硬化が不十分で接着性がよくない。比較例4は無機充填剤がなく、耐湿性がよくない。比較例5は熱硬化型樹脂では硬化が不十分で接着性がよくない。

【0053】

【発明の効果】本発明によれば、基板と気密性シールド材との接着に低透湿性で接着力の強い光硬化性樹脂組成物を用いることで、外部から酸素や水分が有機EL素子へ進入することが防止できる。また、ダークスポットの成長や輝度の低下という経時変化の少なく、高い信頼性の求められる動作環境で使用可能な、実用性の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を提供できる。

【図面の簡単な説明】

*

*【図1】本発明の実施の形態を示す有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図

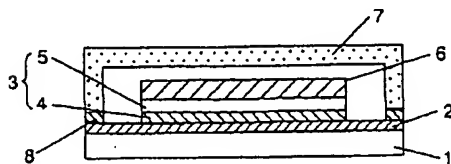
【図2】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子のその他の構成図

【図3】従来の有機エレクトロルミネッセンス素子の要部断面図

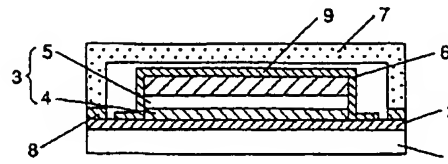
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 正孔注入電極
- 3 有機薄膜層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子注入電極
- 7 気密性シールド材
- 8 接着層
- 9 被覆層

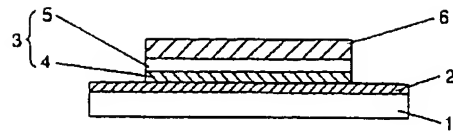
【図1】



【図2】



〔図3〕



フロントページの続き

(72)発明者 行徳 明
 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
 産業株式会社内
 (72)発明者 小森 慎司
 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
 ベークライト株式会社内

(72)発明者 三宅 澄也
 東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友
 ベークライト株式会社内
 Fターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB13 BA07 BB01
 CA01 CA05 CA06 CB01 DA00
 DB03 EB00 FA01 FA02

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-085155

(43)Date of publication of application : 30.03.2001

(51)Int.Cl.

H05B 33/04
H05B 33/14

(21)Application number : 11-258537

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD
SUMITOMO BAKELITE CO LTD

(22)Date of filing : 13.09.1999

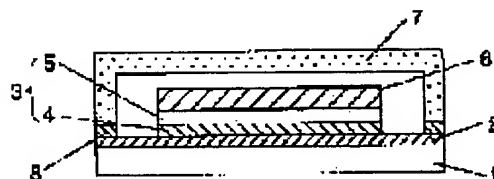
(72)Inventor : KOMATSU TAKAHIRO
GYOTOKU AKIRA
KOMORI SHINJI
MIYAKE SUMIYA

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE USING IT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent element and device inhibiting the growth of dark spots and aged deterioration due to decrease in brightness and having an extended life by preventing oxygen and moisture from entering from the outside.

SOLUTION: This element has a laminate having at least one organic thin-film layer 3 sandwiched between a pair of electrodes 2, 6 arranged on a substrate 1, and at least a portion of the laminate is isolated from the outside by a hermetic shield material 7. The laminate is bonded to at least a portion of the hermetic shield material 7 by a photocuring resin composition containing at least one organic filler as an essential component selected from the group consisting of an epoxy compound having two or more epoxy groups in a molecule, a photo-cationic curing initiator, a plate-shaped inorganic filler and a scaly inorganic filler, with the organic filler contained in an amount of 20 wt.% or more in the resin composition.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

06.12.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2**** shows the word which can not be translated.
3In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] It has the layered product by which much more organic thin film layer was ***(ed) at least between the electrode of the pair arranged on a substrate, and the electrode of said pair. Said a part of layered product [at least] is the organic electroluminescent element by which it was intercepted by airtight shielding material with the exterior. The epoxy compound with which said layered product and said a part of airtight shielding material [at least] have two or more epoxy groups in 1 intramolecular. The inorganic bulking agent chosen from the group which consists of an optical cation hardening initiator and a tabular inorganic bulking agent, and a scale-like inorganic bulking agent at least one is used as an indispensable component. And the organic electroluminescent element characterized by having pasted up with the photo-setting resin constituent with which 20 or more percentage by weight of said inorganic bulking agent was contained in the resin constituent.

[Claim 2] It has the layered product by which much more organic thin film layer was ***(ed) at least between the electrode of the pair arranged on a substrate, and the electrode of said pair. Said a part of layered product [at least] is the organic electroluminescent element by which it was intercepted by airtight shielding material with the exterior. The epoxy compound with which said layered product and said a part of airtight shielding material [at least] have two or more epoxy groups in 1 intramolecular. An optical cation hardening initiator, a tabular inorganic bulking agent, the inorganic bulking agent chosen from the group which consists of a scale-like inorganic bulking agent at least one. And the organic electroluminescent element characterized by having pasted up with the photo-setting resin constituent with which the silane coupling agent was used as the indispensable component, and 20 or more percentage by weight of said inorganic bulking agent was contained in the resin constituent.

[Claim 3] The organic electroluminescent element according to claim 1 or 2 characterized by said epoxy compound having a ring.

[Claim 4] The organic electroluminescent element according to claim 3 characterized by being the epoxy compound chosen from the group which the epoxy compound which has said ring becomes from a bisphenol mold epoxy resin and a naphthalene mold epoxy resin at least one.

[Claim 5] The organic electroluminescent element according to claim 3 or 4 to which the epoxy compound which has said ring is characterized by making indispensable a bisphenol mold epoxy resin and a naphthalene mold epoxy resin.

[Claim 6] The organic electroluminescent element according to claim 5 characterized by for said bisphenol mold epoxy resin being the diglycidyl ether ghost of 2 and 2'-bis(4-hydroxyphenyl) ethane, and a naphthalene mold epoxy resin being the diglycidyl ether ghost of 1 and 6-dihydroxy naphthalene.

[Claim 7] An organic electroluminescent element given in either of claims 1-6 characterized by said optical cation hardening initiator containing hexafluoroantimonate and at least one sort of counter anions chosen from the group which it becomes from tetrakis (pentafluorophenyl) borate.

[Claim 8] An organic electroluminescent element given in either of claims 1-7 characterized by being at least one sort chosen from the group which said inorganic bulking agent becomes from talc, a mica, and a mica.

[Claim 9] An organic electroluminescent element given in either of claims 1-8 to which mean particle diameter of said inorganic bulking agent is characterized by being 10 micrometers or less.

[Claim 10] The optical cation hardening initiator component which makes hexafluoroantimonate a counter anion at this by the epoxy compound of said photo-setting resin constituent consisting of a diglycidyl ether ghost of 2 and 2'-bis(4-hydroxyphenyl) ethane, and a diglycidyl ether ghost of 1 and 6-dihydroxy naphthalene, an organic electroluminescent element given in either of claims 1-9 characterized by blending talc with a mean particle diameter of 10 micrometers or less as an inorganic bulking agent.

[Claim 11] The optical cation hardening initiator component which makes tetrakis (pentafluorophenyl) borate a counter anion at this by the epoxy compound of said photo-setting resin constituent consisting of a diglycidyl

naphthalene, the organic electroluminescent element according to claim 1 characterized by blending talc with a mean particle diameter of 10 micrometers or less as an inorganic bulking agent.

[Claim 12] Organic electroluminescence equipment characterized by using the organic electroluminescent element of a publication for either of claims 1-11.

[Translation done.]

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2.*** shows the word which can not be translated.
3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the organic electroluminescence equipment using the organic electroluminescent element and this which are used as various indicating equipments or a light emitting device for the light source, a back light, or optical-communication devices, especially relates to optimization of the closure structure for the improvement in dependability of an organic electroluminescent element.

[0002]

[Description of the Prior Art] The inorganic EL element which an electroluminescent element (it is hereafter described as a "EL element") is a luminescence device using the electroluminescence of the solid-state fluorescence matter, and used the inorganic system ingredient as an illuminant by current is put in practical use, and application expansion to a back light, a flat display, etc. of a liquid crystal display is achieved partly.

[0003] On the other hand, although the research on the organic EL device using an organic material also attracted attention for many years and various examination had been performed, luminous efficiency did not progress to full-fledged utilization research from a very bad thing. However, the organic EL device which will have the laminated structure of the functional discrete type which divided the organic material into two-layer [of an electron hole transportation layer and a luminous layer] with the C. W. tangues (C. W.Tang) of KODAKKU in 1987 was proposed, and it became clear that two or more 1000 cd/m high brightness luminance is obtained in spite of the low battery not more than 10V (C. W.Tang and S.A.Vanslyke:Appl.Phys.Lett. 51 (1987) P913). **** attention of the organic EL device begins to be carried out after this, and research on the organic EL device of the laminating mold with which current has the same configuration is done briskly.

[0004] Here, drawing 3 explains the conventional organic EL device configuration briefly.

[0005] Drawing 3 is the important section sectional view of the conventional organic electroluminescent element.

[0006] For a hole-injection electrode and 3, as for an electron hole transportation layer and 5, in drawing 3, an organic thin film layer and 4 are [1 / a substrate and 2 / a luminous layer and 6] cathode. The conventional organic EL device Namely, the transparency or the translucent substrate 1 of glass etc. The hole-injection electrode 2 which consists of transparent conductive film, such as ITO formed by the sputtering method etc. on the substrate 1. The electron hole transportation layer 4 which consists of TPD (N, N'-diphenyl-N, the N'-screw (3-methylphenyl) -1, 1'-diphenyl -4, 4'-diamine) formed by resistance heating vacuum deposition etc. on the hole-injection electrode 2. It has the luminous layer 5 which consists of Alq3 (8-Hydroxyquinoline Aluminum) formed by resistance heating vacuum deposition etc. on the electron hole transportation layer 4, and the cathode 6 which consists of a metal membrane formed by resistance heating vacuum deposition etc. on the luminous layer 5.

[0007] When direct current voltage or a direct current is impressed by making cathode 6 into a minus pole, using as a plus pole the hole-injection electrode 2 of the organic EL device which has the above-mentioned configuration, an electron hole is poured into a luminous layer 5 through the electron hole transportation layer 4 from the hole-injection electrode 2, and an electron is poured into a luminous layer 5 from cathode 6. In a luminous layer 5, the recombination of an electron hole and an electron arises, and in case the excitation generated in connection with this shifts to a ground state from an excitation state, luminescence happens. Moreover, luminescence wavelength is changeable by changing the ingredient used for the layer structure which constitutes the organic thin film layer 3, or a luminous layer 5.

[0008] In order to raise the luminescence property of such an organic electroluminescent element, amelioration of the organic material used for the configuration of organic thin film layers, such as a luminous layer and an electron hole transportation layer, or this and amelioration of the ingredient used for an anode plate and cathode have so far been considered.

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi.ejje

2006/04/24

JP.2001-085155.A [DETAILED DESCRIPTION]

3/8 ページ

component. And said inorganic bulking agent is characterized by having pasted up with the photo-setting resin constituent contained 20 or more percentage by weight in the resin constituent.

[0019] According to this invention, an organic electroluminescent element with high dependability with little aging called growth of a dark spot and the fall of brightness is obtained.

[0020]

[Embodiment of the Invention] This invention has the layered product by which much more organic thin film layer was ****(ed) at least between the electrode of the pair arranged on a substrate, and the electrode of said pair. Said a part of layered product [at least] is the organic electroluminescent element by which it was intercepted by airtight shielding material with the exterior. The epoxy compound with which said layered product and said a part of airtight shielding material [at least] have two or more epoxy groups in 1 intramolecular. The inorganic bulking agent chosen from the group which consists of an optical cation hardening initiator and a tabular inorganic bulking agent, and a scale-like inorganic bulking agent at least one is used as an indispensable component. And it is the organic electroluminescent element characterized by having pasted up with the photo-setting resin constituent with which 20 or more percentage by weight of said inorganic bulking agent was contained in the resin constituent. Since it becomes possible to intercept the moisture and oxygen from the outside to some extent, growth of the dark spot in a luminous layer is prevented, and it has an operation that the fall of luminous brightness with time can be controlled.

[0021] Here, a humidity test occurs as one of the reliability trials with an important organic electroluminescent element. This humidity test carries out long duration processing of the organic electroluminescent element under a high-humidity/temperature condition, and observes growth of the dark spot of a luminous layer, this invention persons found out being greatly influenced by the configuration, property, and addition of an inorganic bulking agent which the moisture permeability of the glue line formed with the photo-setting resin constituent which is this adhesion resin adds to a constituent. That is, when at least one sort of inorganic bulking agents chosen from the group which consists of a tabular inorganic bulking agent and a scale-like inorganic bulking agent were used as the indispensable component and 20 or more percentage by weight was contained in the resin constituent of a photoresist epoxy resin, it became clear that growth of the dark spot considered that moisture permeability becomes small and originates in penetration of the moisture into an organic electroluminescent element in the humidity test of an organic electroluminescent element could be controlled.

[0022] or [being easily divided in the regular direction with a crystal as a tabular inorganic bulking agent and a scale-like inorganic bulking agent are inorganic bulking agents which have cleavability in almost all those cases and it is indicated as cleavage by 569 pages (Heisei 3, Chemical Society of Japan edit) of standardization study glossaries] — or it says that peel and a smooth field (cleavage plane) appears. That is, if it has cleavability as a result, each particle will serve as the shape of tabular or a scale. Although there are talc, a mica, mica, etc. as an example of such an inorganic bulking agent, if even the requirements for a configuration are satisfied, a glass flake will be sufficient and it will not be limited especially.

[0023] Moreover, the addition of these inorganic bulking agents is also an important factor. In the photo-setting resin constituent of this invention, the content of the inorganic bulking agent chosen from the group which consists of a tabular inorganic bulking agent and a scale-like inorganic bulking agent at least one can reduce moisture permeability notably by 20 or more percentage by weight.

[0024] Furthermore, the particle size of an inorganic bulking agent will become more advantageous to low moisture-permeable implementation, if mean particle diameter is 10 micrometers or less. If 20 or more percentage by weight of contents of the inorganic bulking agent chosen from the group which consists of a tabular inorganic bulking agent and a scale-like inorganic bulking agent at least one is contained, adding anisomorphism and a spherical inorganic bulking agent otherwise if needed will not interfere etc.

[0025] As for the epoxy compound which has two or more epoxy groups in 1 intramolecular in this invention, it is desirable that it is what has a ring. Moreover, the epoxy compound chosen from the group which consists of a bisphenol mold epoxy resin and a naphthalene mold epoxy resin at least one is desirable, and it is more more desirable still that the bisphenol mold epoxy resin and the naphthalene mold epoxy resin are contained in coincidence. While the molecule itself serves as water repellence because a bisphenol mold epoxy resin has a ring in intramolecular, and moisture permeability becomes small, it is the features that it is hypoviscosity. It is hypoviscosity, and especially the diglycidyl ether ghost of 2 and 2'-bis(4-hydroxyphenyl) ethane of the solubility of other components, such as an initiator, is also good, and desirable. Moreover, although a naphthalene mold epoxy resin has a fault used as hyperviscosity, it can realize very good low moisture permeability, and its glycidyl ether ghost of 1 and 6-dihydroxy naphthalene is especially desirable. The combination with a bisphenol mold epoxy resin is very effective, the moisture and oxygen from the outside are intercepted, growth of the dark spot in a luminous layer is prevented, and it has an operation that the fall of luminescence brightness with time can

ingredient of electrical conductivity is proposed for the purpose of making the obstruction of cathode and a luminous layer low small [work functions, such as a Mg-Ag alloy given in a U.S. Pat. No. 4,885,211 specification, and an aluminum-Li alloy given in JP.5-121172.A.] so that impregnation of an electron may become easy to a luminous layer, and such an ingredient is widely used even for current.

[0010] However, these alloy ingredients have high activity, and since it is chemically unstable, corrosion and oxidation are produced by the reaction with the moisture in air, or oxygen. Such corrosion and oxidation of cathode grow up remarkably the non-light-emitting part called the dark spot (D. S.) which exists in a luminous layer, and cause property degradation with time in an organic electroluminescent element.

[0011] Moreover, also about the organic material used for organic thin film layers, such as not only cathode but a luminous layer, and an electron hole transportation layer, since change of structure is generally produced by the reaction with moisture or oxygen, it becomes the cause which causes growth of a dark spot similarly.

[0012] Even if this invention persons were the moisture of ultralow volume which exists in the vacuum of 10⁻⁴ Torr extent as a result of considering growth of a dark spot from various viewpoints, they discovered promoting growth of a dark spot. Therefore, in order to prevent the reaction of an ingredient, and the moisture and oxygen which are used for cathode or an organic thin film layer in order to lose growth of a dark spot completely and to raise the endurance and dependability of an organic electroluminescent element, the closure of the organic whole electroluminescent element needs to be carried out.

[0013] Although examination of the former many has been performed about the closure of an organic electroluminescent element, the approach most general especially seals the airtight shielding material which consists of a glass cap etc. in an organic electroluminescent element. As already used for such a closure approach by the inorganic electroluminescent element, there are an approach of forming a glass plate in the outside of a back plate, and enclosing silicone oil between a back plate and a glass plate, the approach of shielding with electric insulation glass or an electric insulation airtight fluid, after forming the protective coat which consists of an insulating inorganic compound as indicated by JP.5-089959.A, etc.

[0014]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Although various proposals about the closure approach of an organic electroluminescent element have accomplished as mentioned above, the still effective closure approach is not developed. It is because penetration of moisture or oxygen cannot be completely prevented by an old closure ingredient or the old closure technique. For example, as for the epoxy resin used for adhesion with the cover glass and the substrate in an approach given in JP.5-89959.A mentioned above, generally, 3-5 (g/m²24h/mm), and polyimide resin also have the steam permeability of two (g/m²24h/mm) extent. For this reason, penetration of the moisture from a part for jointing will not be able to be suppressed completely, but, as a result, growth of a dark spot will be caused.

[0015] In addition, in the case of an organic EL device, if it puts to an elevated temperature, it may deteriorate, and by the approach of closing using the epoxy resin of a heat-curing mold, since 50-100 degrees C is a limitation, hardening becomes inadequate, high adhesive strength is not obtained but penetration of the moisture from the interface of resin and a substrate becomes large. Moreover, the acrylate resin of the most general radical hardening system has the problem that moisture resistance is bad, by photo-curing mold resin, and all cause growth of a dark spot.

[0016] Furthermore, although JP.5-182759.A has a proposal about the closure approach possessing a photo-setting resin and a penetrable small substrate, by this approach, it is impossible to suppress penetration of moisture completely under the environment of heat and high humidity like 60 degrees C and 90%RH. This is because penetration of the moisture from the interface of the resin by the lack of adhesive strength of a photo-setting resin and a substrate is large except that moisture penetrates the inside of a photo-setting resin under heat and high humidity.

[0017] This invention aims at offering the organic electroluminescent element and equipment which prevented penetration of the oxygen from the outside, and moisture, stopped growth of a dark spot, and aging of a fall of brightness, and attained reinforcement.

[0018]

[Means for Solving the Problem] This invention has the layered product by which much more organic thin film layer was ****(ed) at least between the electrode of the pair arranged on a substrate, and the electrode of said pair. Said a part of layered product [at least] is the organic electroluminescent element by which it was intercepted by airtight shielding material with the exterior. The epoxy compound with which said layered product and said a part of airtight shielding material [at least] have two or more epoxy groups in 1 intramolecular. The inorganic bulking agent chosen from the group which consists of an optical cation hardening initiator and a tabular inorganic bulking agent, and a scale-like inorganic bulking agent at least one is used as an indispensable

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi.ejje

2006/04/24

JP.2001-085155.A [DETAILED DESCRIPTION]

4/8 ページ

[0026] Although the optical cation hardening initiator which is the indispensable component of the photo-setting resin constituent in this invention has some classes, such as diazonium salt, iodonium salt, and sulfonium salt, the structure of a counter anion is more important for moisture permeability than cation side structure rather. It is desirable that counter anions are hexafluoroantimonate and tetrakis (pentafluorophenyl) borate. When hexafluoroantimonate and tetrakis (pentafluorophenyl) borate are used as an optical cation hardening initiator (b), the activity of the acid (proton) generated by UV irradiation becomes high, raises the crosslinking density of a photo-setting resin constituent, and makes moisture permeability small.

[0027] Moreover, in this invention, adhesion is also important at the time of moisture absorption with each jointing material. If a silane coupling agent is further added as an indispensable component in addition to an epoxy compound, an optical cation hardening initiator, and an inorganic bulking agent, the adhesion of an interface becomes still stronger and the water which invades from an interface can be inhibited. What has an epoxy group as this silane coupling agent is more desirable in respect of reactivity.

[0028] The photo-setting resin constituent in this invention is not hindered by in addition to this adding the elastomer for acquiring flexibility, a defoaming agent, a CHIKISO grant agent, a diluent, and an auxiliary heat-curing mold-curing accelerator if needed at all.

[0029] The gestalt of operation of this invention is explained using drawing below.

[0030] Drawing 1 is the important section sectional view of an organic electroluminescent element showing the gestalt of operation of this invention.

[0031] In drawing 1, the hole-injection electrode 2 is formed on a substrate 1, the organic thin film layer 3 which consists of a bilayer of the electron hole transportation layer 4 and a luminous layer 5 is formed on this hole-injection electrode 2, and the laminating of the electron injection electrode 6 is further carried out on it. And the airtight shielding material 7 has been arranged around these layered products, and the lower limit is connected to the hole-injection electrode 2 by the glue line 8.

[0032] As a substrate 1, transparency or translucent glass, PET (polyethylene terephthalate), a polycarbonate, amorphous polyolefine, etc. are used. Moreover, the thing and flexible substrate which have the flexibility which these ingredients as the thin film are sufficient as a substrate 1. As a hole-injection electrode 2, ITO, ATO (SnO₂ which doped Sb), AZO (ZnO which doped aluminum), etc. are used.

[0033] Which structure of the two-layer structure of the electron hole transportation layer 4, a luminous layer 5 or a luminous layer 5, and an electronic transportation layer (not shown) and the three-tiered structure of the electron hole transportation layer 4, a luminous layer 5, and an electronic transportation layer is sufficient as the organic thin film layer 3 besides the monolayer structure of only a luminous layer 5, however — the case of such a two-layer structure or a three-tiered structure — the electron hole transportation layer 4 and the hole-injection electrode 2 — or a laminating is carried out and it is formed so that the electron injection electrode 6 may touch an electronic transportation layer.

[0034] What has a fluorescence property in a visible region, and consists of a good fluorescent substance of membrane formation nature as a luminous layer 5 is desirable. Besides Alq₃ or Be-benzoquinoline (BeBq₂), it is 2 and 5-screw [5, 7-G (p-pentyl-2-benzoxazoly)] - 1, 3, 4-thiadazole, A 4 and 4-bis(5, 7-Ben Chlil-2-benzoxazoly) stilbene, A 4 and 4' bis[-] [5 and 7-G (2-methyl-2-butyl)-2-benzoxazoly] stilbene, 2, a 5-bis(5, 7-G-Ben Chlil-2-benzoxazoly) thio fin, 2, a 5-bis(5-alpha and alpha-dimethylbenzyl)-2-benzoxazoly) thiophene, 2, 5-screw [5 and 7-G (2-methyl-2-butyl)-2-benzoxazoly]-3, 4-diphenyl thiophene, 2, a 5-bis(5-methyl-2-benzoxazoly) thiophene, A 4 and 4'-bis(2-benzoKISAZORIRU) biphenyl, 5-methyl-2-[2-(4-(5-methyl-2-benzoKISAZORIRU) phenyl) vinyl] benzoKISAZORIRU, Benzoazolate systems, such as 2-[2-(4-chlorophenyl) vinyl] [1 and 2-naphth d] oxazole, 2, 2' - (p-phenylenedivinylene) - Benzothiazole systems, such as screw benzothiazole, 2-[2-(4-(2-benzimidazoly) phenyl) vinyl] benzimidazole, Fluorescent brighteners, such as benzimidazole systems, such as 2-[2-(4-carboxyphenyl) vinyl] benzimidazole, Tris (eight quinolinol) aluminum, bis (eight quinolinol) magnesium, Bis(Benzof-eight quinolinol) zinc, bis(2-methyl-8-quinolate) aluminum oxide, A tris (eight quinolinol) indium, tris (5-methyl-eight quinolinol) aluminum, An eight-quinolinol lithium, a tris (5-chloro-eight quinolinol) gallium, Metal chelation oxy-NOIDO compounds, such as 8-hydroxyquinoline system metal complexes, such as bis(5-chloro-eight quinolinol) calcium, Pot [zinc, and bis(8-hydroxy-5-KINORl nonyl) methane], and dilithium EPINDORI dione, 1, 4-bis(2-methyl styryl) benzene, 1, 4-(3-methyl styryl) benzene, 1, 4-bis(4-methyl styryl) benzene, JISUCHIRUR benzene, 1, 4-bis(2-methyl styryl) benzene, 1, 4-bis(3-methyl styryl) benzene, Styryl benzenoid compounds, such as 1 and 4-bis(2-methyl styryl) 2-methylbenzene, 2, 5-bis(4-methyl styryl) pyrazine, 2, 5-bis(4-methyl styryl) pyrazine, 2 and 5-bis[2-(1-naphthyl) vinyl] pyrazine, 2, 5-bis(4-methoxy styryl) pyrazine, JISUCHIRUR pyrazine derivatives, such as 2 and 5-bis[2-(4-biphenyl) vinyl] pyrazine, 2, and 5-bis[2-(1-pyrenyl) vinyl] pyrazine, The North America Free Trade Agreement RUIMIDO derivative, a perylene derivative, an OKISA diazole derivative, an aldehyde derivative, a cyclopentadiene derivative, a styryl anine

[0033] As an electron hole transportation layer 4, hole mobility is high and are transparent. The good thing of membrane formation nature preferably besides triphenylamine derivatives, such as TPD Porphin, tetraphenylporphine copper, a phthalocyanine, a copper phthalocyanine, Porphyrin compounds, such as titanium phthalocyanine oxide, and a 1 and 1-bis[4-(G P-tolylamino) phenyl] cyclohexane, 4, 4', a 4"-trimethyl triphenylamine, N and N, N'-tetrakis (P-tolyl)-P-phenylenediamine, 1-(N and N-G P-tolylamino) naphthalene, 4, a 4-bis[- / -2-2] (dimethylamino) -dimethyl triphenylmethane color, N, N, N', and N' - the - tetra-phenyl -4 and 4' - diamino biphenyl - N, N'-diphenyl-N, the N-G m-tolyl -4, N, N-diphenyl-N, the N'-screw (3-methylphenyl) -1, 1' - 4 4'-diamine, Aromatic series tertiary amines, such as a 4'-diamino biphenyl and N-phenyl carbazole, Stilbene compounds, such as a 4-G P-tolylamino stilbene and 4-(G P-tolylamino)-4-[4-(G P-tolylamino) styryl] stilbene, A triazole derivative, an OKISAJIZAZORU derivative, and an imidazole derivative, The poly aryl alkane derivative, a pyrazoline derivative, and a pyrazolone derivative, A phenylenediamine derivative, an annealing amine derivative, and an amino permutation chalcone derivative, an oxazole derivative, a styryl anthracene derivative, and full - ine - non - a derivative - A hydrazone derivative, a silazane derivative, a polysilane system aniline system copolymer, giant-molecule oligomer, a styryl amine compound, an aromatic series JIMECHIRI DIN system compound, and organic materials, such as Pori 3-methylthiophene, are used. Moreover, the electron hole transportation layer 4 of the macromolecule dispersed system which distributed the organic material for low-molecular electron hole transportation layer 4 is also used into macromolecules, such as a polycarbonate.

[0036] In addition, as an electronic transportation layer, OSAJI azole derivatives, such as 1 and 3-bis(4-tert-butylphenyl) -1, 3, 4-oxadiazolyl) phenylene (OXD-7), an anthra quinodimethan derivative, a diphenyl quinone derivative, etc. are used.

[0037] As an electron injection electrode 6, aluminum alloys, such as Mg alloys, such as metals, such as aluminum, In, Mg, and Ti, and a Mg-Ag alloy, a Mg-In alloy, and an aluminum-Li alloy, an aluminum-Sr alloy, an aluminum-Ba alloy, etc. are used. Especially an aluminum-Mg alloy or an aluminum-Li-Mg alloy is a low work function, moreover is the corrosion resistance outstanding metal, and is very effective.

[0038] One of the descriptions of this invention is pasting this up on a substrate 1 by the glue line 8 of a photo-setting resin constituent, and closing the organic thin film EL element using the airtight shielding members 7, such as stainless steel and glass. The photo-setting resin constituent used for the glue line 8 was wholeheartedly examined from the moisture resistance of resin, and adhesive both sides of a substrate 1 and the airtight shielding member 7. The photo-setting resin constituent used for the glue line 8 in this invention uses as an indispensable component the inorganic bulking agent chosen from the group which becomes 1 intramolecular from the epoxy compound which has two or more epoxy groups, an optical cation hardening initiator, a tabular inorganic bulking agent, and a scale-like inorganic bulking agent at least one, and 20 or more percentage by weight of inorganic bulking agents contains it in a resin constituent. When it was such a photo-setting resin constituent, this invention persons checked that the outstanding moisture resistance and an adhesive property were realizable.

[0039] Especially the configuration of the organic EL device manufactured by this invention is not alone plate is limited. For example, structures other than hole-injection electrode [which was shown above] (anode plate) 2, electron hole transportation layer 4, luminous layer 5, and electron injection electrode (cathode) 6. You may be the three-tiered structure of the monolayer mold component of the hole-injection electrode 2, a luminous layer 5, and the electron injection electrode 6 or the hole-injection electrode 2, a luminous layer 5, an electronic transportation layer, the two-layer mold structure of the electron injection electrode 6 and the hole-injection electrode 2, the electron hole transportation layer 4, a luminous layer 5, an electronic transportation layer, and the electron injection electrode 6.

[0040] Moreover, the organic electroluminescent element of this invention may be replaced with what was shown in drawing 1, as shown in drawing 2, the organic thin film layer 3 which consists of the hole-injection electrode 2, an electron hole transportation layer 4, and luminous layer 5 grade on a substrate 1, and after forming the electron injection electrode 6 further, may make the photo-setting resin constituent of this invention an enveloping layer 9, may carry out a laminating, and it may paste up the airtight shielding material 7 and a substrate 1 by the glue line 8 of a photo-setting resin constituent after that.

[0041] The manufacture approach of the organic EL device of this invention is as follows.

[0042] First, sequential membrane formation is carried out by resistance heating vacuum deposition, the ion beam sputter method, etc., and the laminating of the electron injection electrode 6 which consists of the electron hole transportation layer 4 which consists of a hole-injection electrode 2 which consists of ITO etc. on the substrates 1, such as glass, by the well-known approach, TPD, etc., a luminous layer 5 which consists of Alq3 grade, an aluminum-Li alloy, etc. is carried out. Furthermore, as an adhesion process, if the airtight shielding

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejie

2006/04/24

drawing 1 R 1 will be obtained.

[0043]

[Example] The creation point of the organic electroluminescent element which this inventions performed is as follows.

[0044] First, the hole-injection electrode 2 (160nm of thickness) using ITO was etched into the substrate 1 of the glass with which the ITO film was formed in the whole surface using the hydrochloric acid so that a predetermined pattern configuration might be formed. after cleaning ultrasonically for 10 minutes with pure water after cleaning this substrate 1 ultrasonically for 5 minutes with a detergent (a trade name - " SEMIKO clean" and fruity chemistry company make), and cleaning ultrasonically for 5 minutes with an ammonia hydrogen-peroxide solution (NH3:H2O2:H2O=2:2:5) further, 70-degree C pure water performed ultrasonic cleaning for 5 minutes, excess water was evaporated in the nitrogen blower, and it was made to heat and dry at the temperature of 250 degrees C finally

[0045] Thus, after setting the washed substrate 1 in resistance heating vacuum evaporation equipment and decompressing the inside of a chamber to the degree of vacuum of 2x10 to 6 or less Torr, TPD was made into the source of vacuum evaporation, and about 500A electron hole transportation layer 4 was formed. Then, about 750A luminous layer 5 is formed by making Alq3 into the source of vacuum evaporation. Although especially the evaporation rate was not limited, TPD and Alq were performed in s in 2A /. Next, within the same vacuum layer, the AlLi alloy containing 15at(s) % Li was made into the source of vacuum evaporation, and the electron injection electrode 6 of 2000A thickness was formed.

[0046] The substrate 1 with which this component was formed was taken out from the vacuum chamber, and the airtight shielding member 7 was formed in the outside of a component. That is, SUS303 (Fe-Cr-nickel alloy) was used for the airtight shielding material 7, and the photoresist epoxy resin was object[for dispensers]-***** (ed) into the part which touches a substrate 1, and it irradiated so that it might become 7 J/cm2 about ultraviolet rays with high pressure mercury vapor lamp, as superposition was not given to the substrate 1 of the glass with which the component was formed and a damage was not given to an organic layer. Thus, the airtight shielding material 7 produced the organic electroluminescent element pasted up with the photo-setting resin constituent.

[0047] For evaluation of the produced organic electroluminescent element, Table 1 And (Table 2) carried out the humidity test, and the result was obtained. The defect judging by this trial considered as the defect in the place where the largest dark spot on the front face of a component became 50 microns or more, and described the mean time which repeated the same experiment 3 times.

[0048] Moreover, since it was heat-curing mold resin about the example 5 of a comparison, it hardened on 50 degrees C and the heat-curing conditions of 3 hours, and the same humidity test as the above after adhesion was carried out for the substrate 1 and the airtight shielding material 7 of glass.

[0049] all combination of a substrate 1 and the photo-setting resin constituent used for adhesion of the airtight shielding material 7 - Table 1 and (Table 2) it followed and carried out, and using the De Dis parser, heating, melting, and after mixing, it kneaded using 5 inch 3 rolls, and the ***** liquefied photo-setting resin constituent was obtained. Moreover, Table 1 As a result of being a humidity test (Table 2), it described collectively.

[0050]

[Table 1]

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejie

2006/04/24

JP.2001-085155A [DETAILED DESCRIPTION]

7/8 ページ

(単位：重量パーセント)

成分	1	2	3	4	5	6	7	8
エポキシ樹脂A (注1)	20	55		10	65	30	28	50
エポキシ樹脂B (注2)				10				
エポキシ樹脂C (注3)	45		80	10		20	30	5
1,5-ヘキサジニール (注4)	4		5	10		4	4	
アクリルエポキシ樹脂 (注5)		4						
ロータール207A (注6)			2	5				
A-187 (注7)	1	1		1				
フルクソ (注8)	30		20		30	25		10
タフタ (注9)			20				40	
マイカ (注10)		40						15
シリカ (注11)			35			20		15
フィラー含有量	30	40	20	35	30	45	40	40
合計	100	100	100	100	100	100	100	100
硬化性試験	(注12)	4000時間	2500時間	3000時間	3000時間	4000時間	1000時間	3000時間

注1 三井化学(株) ビスフェノールA型エポキシ樹脂(2, 2'-ビス(ヒドロキシフェニル)エタンのグリシジルエーテル化合物)
 注2 旭化成工業(株) ビスフェノールA型エポキシ樹脂
 注3 大日本インキ工業(株) ナフタレン系エポキシ樹脂
 注4 旭化成工業(株) ヘキサフルオロエポキシ樹脂(含有芳香族化合物)
 注5 ロンゾウ(株) ナフタレン系エポキシ樹脂(含有芳香族化合物)
 注6 日本ユニカー(株) シランカップリング剤
 注7 平均粒径1μmのタルク
 注8 平均粒径5μmのタルク
 注9 平均粒径5μmのマイカ
 注10 平均粒径5μmのシリカ
 注11 高純度シリカ
 注12 高温高湿試験条件 40℃、90%

[0051]

[Table 2]

(単位：重量パーセント)

成分	1	2	3	4	5
EB204 (注1)	65				
SP1509 (注2)		65			
イルガキュア651 (注3)	5	5			
エポキシ樹脂 (注4)			85	85	58
イソホロンジエーテル (注5)				10	20
ポリエーテルポリオキサンA (注6)					
SP 1509 (注7)			5	4	
A-187 (注8)				1	
フルクソ (注9)	30	30	10		30
フィラー含有量	30	30	10	0	30
合計	100	100	100	100	100
硬化性試験	(注10)	60時間	2500時間	65時間	3時間

注1 ダイセル・ユーシービ(株) 芳香族フレンアクリレート樹脂
 注2 昭和化学(株) ビニルエステル樹脂
 注3 日本ナバガイギー(株) 光硬化剤
 注4 旭化成工業(株) ビスフェノールA型エポキシ樹脂
 注5 分子重400の2位置置ポリエーテルポリオキサン
 注6 旭化成工業(株) ヘキサフルオロエポキシ樹脂(含有芳香族化合物)
 注7 日本ユニカー(株) シランカップリング剤
 注8 平均粒径1μmのタルク
 注9 高純度シリカ
 注10 高温高湿試験条件 40℃、90%

[0052] (Table 1) The fact of reach (Table 2) shows that examples 1-8 have the moisture resistance which was excellent in each. Moreover, since the examples 1 and 2 of a comparison are photoresist acrylate resin of a radical hardening system, its moisture resistance is not good. Although the example 3 of a comparison is a photoresist epoxy resin, hardening is inadequate and an adhesive property is not good. The example 4 of a comparison does not have an inorganic bulking agent, and is not good. [of moisture resistance] Heat-curing mold resin of hardening is [the example 5 of a comparison] inadequate, and it is not good. [of an adhesive property]

[0053]

[Effect of the Invention] According to this invention, it can prevent that oxygen and moisture advance from the exterior to an organic EL device by using the strong photo-setting resin constituent of adhesive strength for the substrate and airtight shielding material with low moisture permeability. Moreover, the organic

IPD and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The important section sectional view of an organic electroluminescent element showing the gestalt of operation of this invention

[Drawing 2] The block diagram of others of the organic electroluminescent element of this invention

[Drawing 3] The important section sectional view of the conventional organic electroluminescent element

[Description of Notations]

- 1 Substrate
- 2 Hole-Injection Electrode
- 3 Organic Thin Film Layer
- 4 Electron Hole Transportation Layer
- 5 Luminous Layer
- 6 Electron Injection Electrode
- 7 Airtight Shielding Material
- 8 Glue Line
- 9 Enveloping Layer

[Translation done.]

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.